



TITLE:

UPt₃およびURu₂Si₂の高分解能
角度分解光電子分光(修士論文
(1998年度))

AUTHOR(S):

伊藤, 孝寛

CITATION:

伊藤, 孝寛. UPt₃およびURu₂Si₂の高分解能角度分解光電子分光(修士論文(1998年度)). 物性研究 1999, 72(5): 670-688

ISSUE DATE:

1999-08-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96671>

RIGHT:

修士論文 (1998年度)

UPt₃およびURu₂Si₂の高分解能角度分解光電子分光

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 放射光・光電子物理研究室

伊藤 孝寛

目次

| | |
|--|-----|
| 第一章 序論 | 671 |
| §1-1 UPt ₃ の物性 | 671 |
| §1-2 URu ₂ Si ₂ の物性 | 673 |
| §1-3 実験目的 | 674 |
| 第二章 実験 | 674 |
| 第三章 結果と考察 | 675 |
| §3-1 UPt ₃ の実験結果と考察 | 675 |
| §3-2 URu ₂ Si ₂ の実験結果と考察 | 681 |
| 第四章 まとめ | 686 |
| 参考文献 | 687 |
| 謝辞 | 688 |

要旨

異方的超伝導に代表される様々な興味深い物性を示すことで知られる強相関5f電子系化合物UPt₃及びURu₂Si₂について、物性に深く関わるフェルミレベル近傍の電子状態、特にフェルミ面の情報を調べるために高分解能角度分解光電子分光を行った。実験的に直接決定したバンド構造をLDAバンド計算と比較することにより、UPt₃及びURu₂Si₂において価電子帯全体を占めるPt5d及びRu4dバンドについては、バンド計算により定性的によく再現されることを見いだした。それに対し、UPt₃及びURu₂Si₂における物性に深く関わるフェルミレベル近傍のU5f及びU5f-Ru4d混成バンドについては、U5f電子の強い電子相関の効果による繰り込み (renormalization) の効果を受けて非常に幅が狭くなっているため、バンド計算では再現されないことを見いだした。さらに、実験から見積もられたU5f及びU5f-Ru4dバンドの有効質量増強因子は、物性測定から見積もられる値と定性的に一致することを見いだした。また、URu₂Si₂においては、U5f-Ru4d混成バンドによる、dHvA測定ではまだ観測されていなかったZ点の大きなホール面を示唆する構造を見いだした。以上の結果から、高分解能角度分解光電子分光法は、5f強相関電子系化合物において、強い電子相関の効果を受けたフェルミレベル近傍のU5f電子状態、特にフェルミ面の情報を得る上で有効であることが示された。

第一章 序論

強相関f電子系化合物は、ヘビーフェルミオンや異方的超伝導に代表される様々な興味深い物性を示すことで知られている。このようなf電子系化合物における特異な物性は、フェルミレベル近傍のf電子にその起源を持つと考えられている。そのため、これらの系におけるf電子状態、特にフェルミ面についての情報を得ることは、その特異な物性の発現機構を解明するために非常に重要である。その中でも、局在的な4f電子と遍歴的な3d電子の中間的な波動関数の広がりを持つ5f電子系の化合物は、局在・遍歴の中間的な性質を示すと考えられており注目されてきている。しかしながら、5f強相関電子系における特異な物性を解明するために、実験・理論両面から様々な研究が行われているにも関わらず、5f電子の性質に関する統一的な見解は得られていない[1-5]。

高分解能角度分解光電子分光法は、フェルミ面の形状のみならず、フェルミレベル以下の微細なバンド分散を実験的に直接観測できる非常に強力な実験手段である[6-8]。これまで、強相関f電子系のフェルミ面は、de Haas-van Alphen (dHvA) 測定でよく研究されてきた。しかし、dHvA測定は極低温（～1K）に限定されるという制約を持っている。dHvA測定に比べ、高分解能高角度分解光電子分光法は以下のような利点を持つと考えられる。1)測定温度の範囲が広く、温度（相転移等）によるフェルミ面の変化を観測することができる。2)フェルミ面のみならずフェルミレベル以下の広い範囲でのバンド構造を決定できるため、フェルミ面の性格（電子的、ホールの）をも決定できる。3)バンド構造そのものを実験的に直接決定できるためブリルアン・ゾーン中のフェルミ面の絶対位置が決定できる。しかしながら、このような利点を持つ高分解能角度分解光電子分光法を用いた、強相関5f電子系化合物の実験はほとんど行われていない。

本研究の目的は、重い電子系の超伝導体として知られているU化合物（UPt₃およびURu₂Si₂）について、高分解能角度分解光電子分光を行い、そのバンド構造、特にフェルミ面の形状を実験的に直接決定し、これらのU5f強相関電子系においてU5f電子の多体効果とその電子状態に与える影響を調べることにある。

§1-1 UPt₃の物性

UPt₃は重い電子系の超伝導体（超伝導転移温度T_c = 0.5 K）として知られており、様々な異常物性を示すことから、最近注目されている。電子比熱曲線の高温部の外挿により見積もられる電子比熱係数は $\gamma = 420 \text{ mJ/molK}^2$ とかなり大きいため、重い準粒子により形成されるフェルミ面の存在が示唆されている。また、T_N = 5 Kで反強磁性相転移を示し、低温における電子比熱はT³lnTの項を持つことから、UPt₃は低温に

においてスピンの揺らぎと超伝導が共存した系となり、超伝導クーパ対がp-波的な対称性を持つことが示唆されている[4,5]。UPt₃におけるこれらの異常物性はU5f電子の基本的性質（遍歴、局在）にその起源を持つため、この系におけるU5f電子の性質を明らかにすることは、非常に重要である。そのため、実験・理論両面からの様々な研究が行われてきているが、U5f電子の本質的役割は未だ統一的な見解に至っていない。現在のところ、UPt₃における実験結果の理解には大きく分けて2つの立場が存在する。1つはU5f電子を遍歴とした取り扱い。もう1つは局在的としたものである。この2つの相反する猫像は、それぞれがUPt₃におけるある程度の物性について良い説明を与える。

図1-1にフェルミ面形状を調べる手段であるdHvA測定の結果[9]を示した。dHvA測定により得られた信号の角度依存性はフェルミ面形状を反映する。UPt₃におけるdHvA測定の結果は、一般に図1-2に示したようなLDA (local-density approximation) を基にしたバンド計算[9]によりよく説明されるため、遍歴的なU5f電子の存在が示唆される。それに対して、dHvA測定で得られるそれぞれのブランチのサイクロトロン有効質量 (m_c^*) 及び、電子比熱係数から見積もられる（ブリルアン・ゾーン全体について積分された）フェルミレベルにおける電子の有効質量は、バンド計算に比べ非常に大きく、質量増強因子 (mass enhancement factor) が非常に大きいことを示唆している[9-12]。このようなU5f電子の有効質量の増強は、UPt₃における強い電子間相互作用の効果、すなわち、U5f電子の局在的性質の現れであると言える。

"high-energy"の実験方法である、光電子分光測定の結果[13-17]の解釈においても、

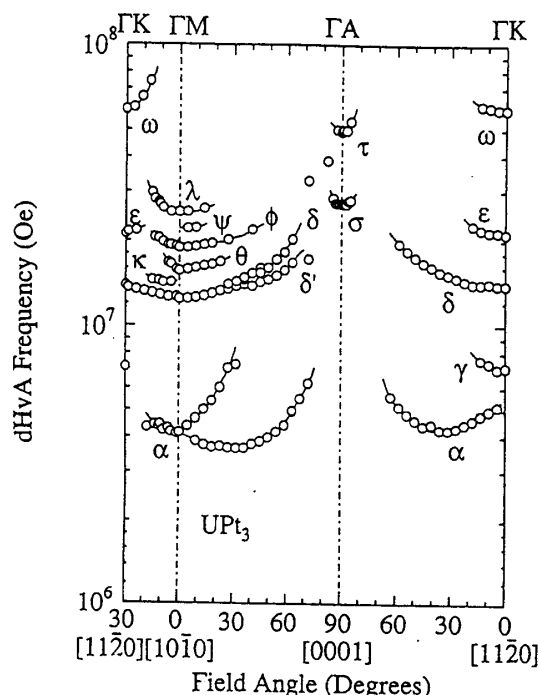


図1-1 UPt₃のdHvA振動数の角度依存性[9]。

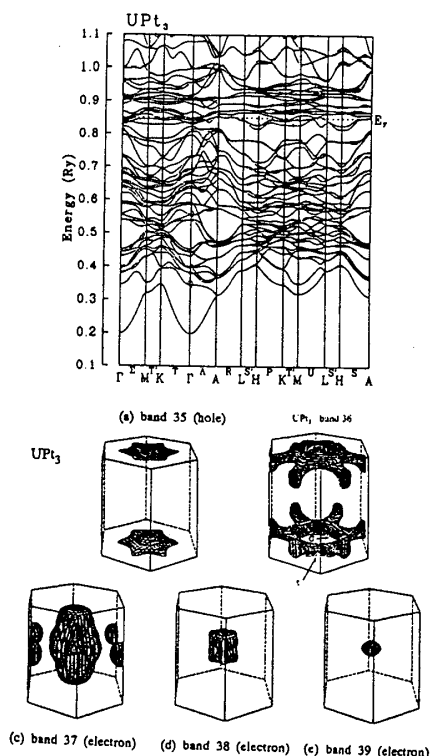


図1-2 (上図) UPt₃のバンド計算 (FLAPW) [9]。
(下図) バンド計算により得られたUPt₃のフェルミ面

前述した"low-energy"の実験結果と同様に矛盾が存在する。UPt₃における光電子及び逆光電子スペクトルはフェルミレベル近傍において、比較的ブロードな形状になっており、1不純物アンダーソンモデルを適用した解析をすることで、クーロン相互作用のような微視的パラメータを得られる可能性が示唆されてきている[15,17]。それに対して、最近の角度分解光電子分光を用いた研究[18,19]においては、フェルミ準位ピークが有限の分散を示し、かつピークの温度依存性は比較的小さいという、1不純物アンダーソンモデルの前提条件と本質的に矛盾する結果が報告されている。この結果から、U化合物においてバンド的猫像が有効である可能性が示唆される。一方、最近の周期的アンダーソンモデル[20]による計算結果で、重い電子系化合物の電子状態における前述のような矛盾点を解決できるという報告も成されている。以上のことから、U化合物におけるU5f電子の性質（又はUPt₃におけるスピン揺らぎと超伝導の共存に代表される異常物性）に対する明確な理解は未だ得られていないといえる。

§1-2 URu₂Si₂の物性

URu₂Si₂は重い電子系の超伝導体 ($T_c = 1.5$ K) として知られており、 $T_N = 17.5$ Kで反強磁性相に転移する事から、低温において磁性と超伝導の共存した系になっていると考えられている。電子比熱はネール温度において急激な飛びを持ち、さらに、反強磁性転移温度前後で電子比熱係数の値が急激に減少していることから、URu₂Si₂における反強磁性転移は、電荷密度波もしくはスピン密度波の形成によると考えられている[21,22]。また、電子比熱係数は、高温において180 mJ/molK²、低温において $\gamma = 65$ mJ/molK²であり、通常金属において期待される値より大きいことから、フェルミレベルにおける重い準粒子の存在が示唆されている[5,22]。

URu₂Si₂における複雑な電子構造及び磁気構造はU5f電子にその起源を持つと考えられる。そのため、この系の異常物性に対して中心的な役割を果たすフェルミレベル近傍のU5f電子とRu4d電子が強く混成

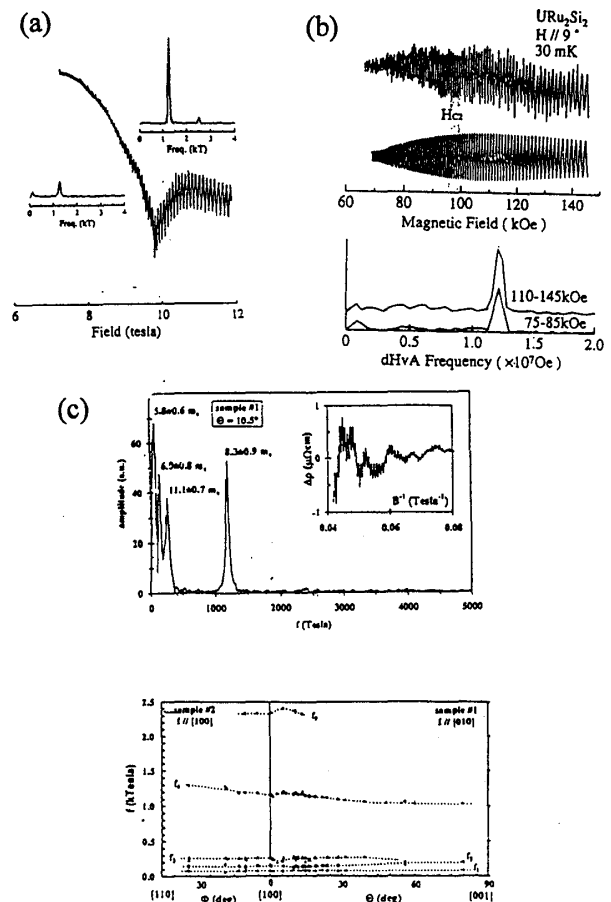


図1-3 (a)C. Bergemannら、(b)H. Ohkuniら、及び (c)N. Kellerらにより得られたURu₂Si₂のdHvA測定の結果

した電子状態、特にフェルミ面の情報について、実験・理論両面から様々な研究が成されてきているが、未だ統一的な見解は得られていない。図1-3(a)-(c)に URu_2Si_2 において既に報告がなされているdHvA測定の結果[23-25]を示した。数本の独立したdHvA振動はそれぞれがフェルミ面に対応するが、それぞれの実験結果は統一的な理解には至っていない。これは、dHvA測定ではフェルミ面形状の情報のみしか得られず、バンド計算と比較なしでフェルミ面の絶対位置及び性格（電子的、ホールの）を決定することができないためである。

以上のような異常物性を示す URu_2Si_2 において角度分解光電子分光法を行い、波数にまで分解した電子状態の情報、すなわちバンド構造を得ることでフェルミ面の絶対位置及び性格を決定し、得られた結果をdHvA測定及びバンド計算の結果と比較することにより、 URu_2Si_2 におけるU5f電子の情報を得ることができると期待される。

§1-3 実験目的

U5f強相関電子系の異常物性に関わるフェルミレベル近傍の電子状態、特にフェルミ面におけるU5f電子の性質を知るためには、U化合物における波数にまで分解した電子状態、特にフェルミ面の情報を実験的に得ることが必要不可欠である。しかし、dHvA測定は極低温領域に限られ、特に、重い電子系においては重い準粒子によってフェルミ面が形成されているため条件は更に厳しくなる。これに対して、角度分解光電子分光法はバンド構造まで実験的に直接決定できるため、フェルミ面の形状のみならず、そのブリルアン・ゾーン中における絶対位置、及び性質をも得ることが可能である。このような利点を生かして、U化合物の中でも、重い電子系の超伝導に代表される異常物性でよく知られている UPt_3 及び URu_2Si_2 について高分解能角度分解光電子分光測定を行い、実験的にバンド構造を直接決定し、フェルミレベル近傍の微細電子構造、特にフェルミ面の情報を得ることは、U5f強相関電子系の物性解明において非常に重要であると考えられる。

第二章 実験

実験は東北大学において建設・改良を進めてきた極低温・高分解能光電子分光装置を用いて行った。本装置の概略図を図2-1に示す。高分解能化のために直径30cmの大きなアナライザーを用い、地磁気の影響を防ぐために二重の μ -メタルで覆っている。これによって最高分解能15 meVを達成している。また、外部からスリットを取り付けることにより角度分解測定が可能である。試料は、He循環型のクライオスタットによって8 Kまで冷却可能である。

本実験では、バンド分散を得るために数十本のスペクトルをとる必要があり、ま

た試料の劣化が早いために角度分解能は $\pm 1^\circ$ 、エネルギー分解能は50meVにセットした。励起光にはHeI(21.22 eV)共鳴線を用い、光電子分光測定に必要な清浄試料表面は、 2×10^{-11} Torrの超高真空中で高品質単結晶を(100)面で劈開することによって得た。測定方向は、UPt₃については劈開面((100)面)について Γ -K-M方向に、URu₂Si₂については劈開面について Γ -X方向にそれぞれセットした。また、試料温度はUPt₃については10 K、URu₂Si₂では30 Kにセットし、それぞれ常磁性相において測定を行った。試料温度は実験を通し

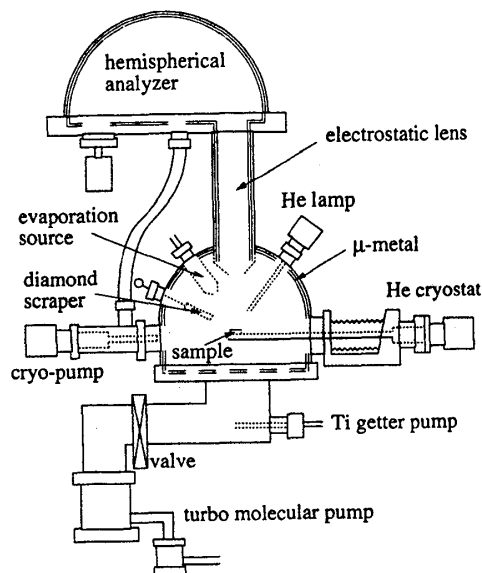


図2-1 極低温・高分解能光電子分光装置の概略図。

て同じ温度に保ち続け、その誤差は1 K以下である。フェルミ準位 (E_F) はサンプルサブストレートに蒸着した金のフェルミエッジから見積もった。フェルミ準位の位置の誤差は、5 meV以下と見積もられた。試料の劣化はバックグラウンドの増加として現れることを利用して、劈開直後のNormal emission ($\theta = 0^\circ$) のスペクトルを基準にとり、一定時間ごとにこのスペクトルを測定することにより表面の劣化をチェックした。

測定に用いた試料はUPt₃については木村憲彰助手から、URu₂Si₂については原研の芳賀芳範博士から頂いた。測定に用いた試料の残留抵抗等の値はdHvA信号が観測されている試料とほぼ同じであり[9,24]、その品質が保証されている。

第三章 結果と考察

§3-1 UPt₃の実験結果と考察

図3-1に10 KにおけるUPt₃の Γ -K-M方向(図3-2参照)の高分解能角度分解光電子スペクトルを示す。スペクトルの強度は、光電子数について規格化した。角度分解スペクトルの横に記してある($\theta =$)は試料表面に対して垂直方向($\theta = 0^\circ$, Normal emission)からの角度を表す。スペクトルが角度を変化させることによって系統的な変化を示していることから、この測定が角度分解測定になっていることが確認できる。角度($\theta =$)は結合エネルギーの関数として波数ベクトル k に変換することができるので、これらの角度分解光電子スペクトルの変化はUPt₃の Γ -K-M(A-H-L)方向のバンド構造を直接反映していると考えられる。($\theta = 0^\circ$ のスペクトルが図3-2のブリルアン・ゾーン中の Γ 点とA点に、 $\theta = 22^\circ$ がK点とH点に、そして $\theta = 30^\circ$ がM点とL点にそれぞれ対

応する。)これらの角度分解スペクトルの振る舞いを詳しく見ていくと、まず $\theta = 0^\circ$ 周辺では、2 eV及び4 eV付近に小さなピークを伴った2本の鋭いメインピークが存在する。更に、0.5-1.5 eVのエネルギー範囲に置いて大きな分散を示すピークが観測される。それに対して、 $\theta = 20^\circ$ - 40° 周辺では、数本のピークを伴った2 eV付近のピークが強度を大きく変化させ、複雑なピーク分散を示している。また、フェルミレベル近傍に注目すると、ほとんど分散を示さない鋭いシャープなピークが常に存在していることが分かる。

これらのバンド分散を詳しく見るためにバンドマッピングを行った。バンドマッピングは、1)図3-1の高分解能角度分解光電子スペクトルに、ピーク位置が変わらないことを確認しながらスムージングをかけ、2)その二階微分をとり、3)その二階微分強度の平方根をグレースケールで表示するといった方法で行った(図3-3参照)。従来行われてきているような、角度分解光電子スペクトルのピーク位置を選んでプロットする事によるバンドマッピングの方法では、主観によるピーク位置のミスリーディングや2次散乱電子によるバックグラウンドの影響があるため正確なバンド分散を得ることができない危険性があるため、図3-3に示したようなバンドマッピングの方法を適用している。

得られた UPt_3 の常磁性相におけるバンド分散を図3-4(a)に示す。図の濃い部分がエネルギーバンドに対応している。図3-4(a)から、ほとんど全てのバンドがブリルアン・ゾーンの境界であるM(L)点について対称的に折り返しており、第2ブリルアン・ゾーン中の Γ (A)点付近におけるバンド分散の形

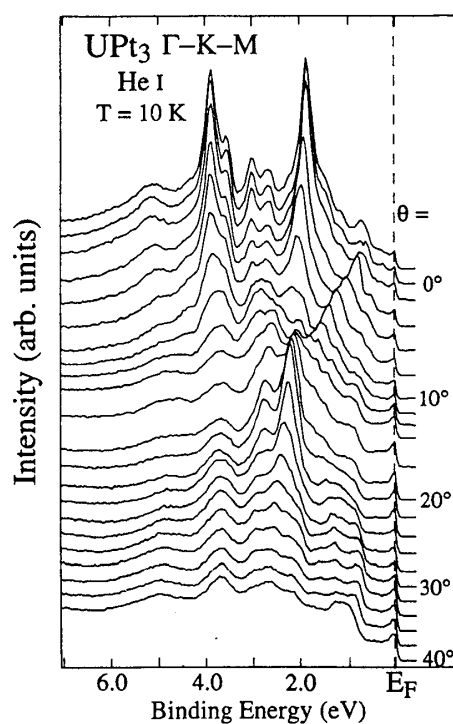


図3-1 UPt_3 の高分解能角度分解光電子スペクトル。

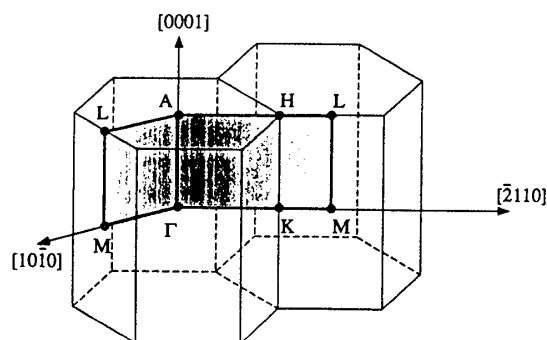


図3-2 UPt_3 (hexagonal)のブリルアン・ゾーン。測定は Γ -K-M方向(Γ KM-LHA emission plane)で行った。

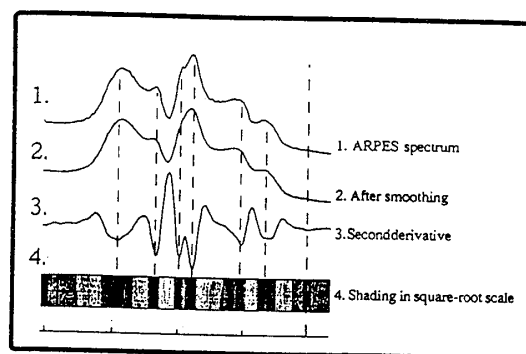


図3-3 二階微分を用いたバンドマッピングの説明図。黒い部分がピークに対応する。

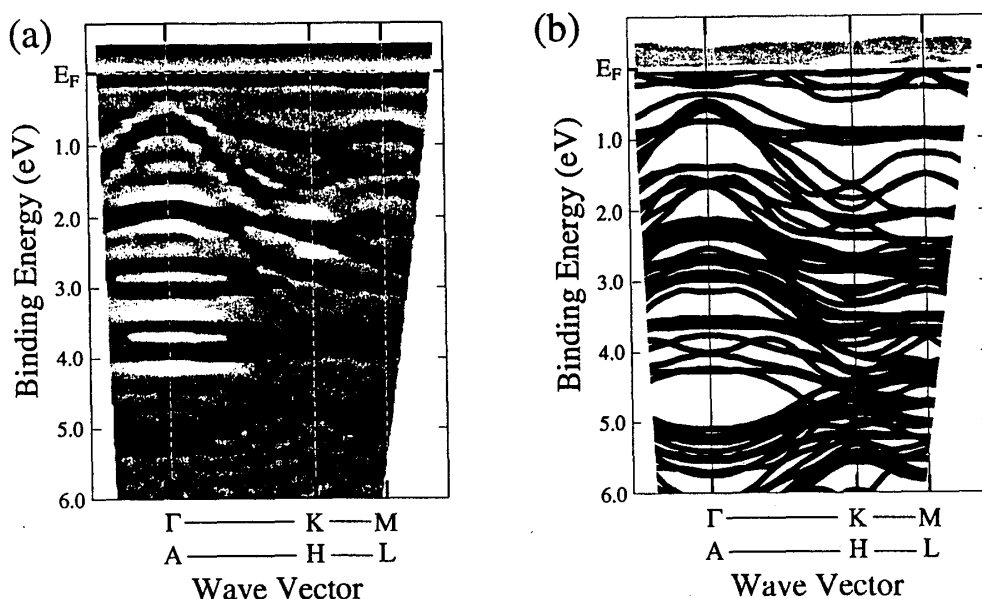


図3-4 (a)高分解能角度分解光電子スペクトルから得られたUPt₃のバンド構造。(b)播磨によるバンド計算の結果[9]。

状が第1ブリルアン・ゾーンにおける分散形状とほとんど同じ事が分かる。このことは、本実験の測定方向が正確であることを示している。角度分解光電子分光法では、二次元的な情報しか得られず、また、 k_{\perp} 方向のlife time broadeningによるぼけによって全ての垂直方向の波数(k_{\perp})を平面に投影したような情報を得ていることになる。しかしながら、high-symmetry line上の大きい状態密度によって角度分解光電子スペクトルは、主にhigh-symmetry line上のバンド構造を反映することが実験・理論的によく知られている[26]。このため、二本のhigh-symmetry lineにおけるバンド計算の結果と実験結果とを直接的に比較することが可能となる。

図3-4(b)にdHvA測定により得られたUPt₃フェルミ面をよく再現している播磨によるFLAPW法によるバンド計算の結果得られたバンド構造[9]を Γ -K-M(A-H-L)方向のhigh-symmetry lineについて示す。バンド計算においてフェルミレベル近傍のバンドはU5f電子、高結合エネルギー側のバンドはPt5d電子に起因する構造である。図3-4(b)に示すように、Pt5dバンドは Γ 点で0.3 eVに頂上を持ち、M点及びK点に向かって下向きに分散する。それ故、バンド計算におけるU5fバンドとPt5dバンドは相対的によく分離していると考えられる。図4-3における直接比較から、実験と理論のバンド構造は全体的に非常に一致を示していることが分かる。このことから、UPt₃の電子構造は基本的にはバンド計算の枠組みによって理解できることが示唆される。Pt5dバンドの分散形状を比較すると、図4-3(a)において、そのエネルギー位置及びバンド幅はバンド計算(図4-3(b))によってかなりよく再現されていることが分かる。このことは、UPt₃において価電子帯を全体的に占めているPt5dバンドに対して、バンド計算はかなり良い近似となることを示唆する。それに対して、フェルミレベル近傍に注目すると、実験においてフェルミレベル直下にかなり幅の狭いバンドが観測されている。この狭いバンドは、バンド計算との比較からU5f電子に起因する構造

であることが分かる。実験のU5fバンドの幅はかなり狭いのに対しバンド計算におけるU5fバンドのうち幾つかは $E_F - 0.5$ eVのエネルギー範囲で明確な分散を示している。このことから、Pt5dバンドに対してはバンド計算が実験と良い一致を示しているが、フェルミレベル近傍におけるU5fバンド (U5f準位) については定性的にも再現できていないと考えられる。

図3-5にフェルミレベル近傍の Γ -K-M方向について得られた高分解能角度分解光電子スペクトルを示す。参考のために金のフェルミエッジのスペクトルを上部に添付する。まず、フェルミレベル直下において、強度に角度依存性を持つ鋭いシャープなピークが存在することが分かる。スペクトル強度は光電子数について

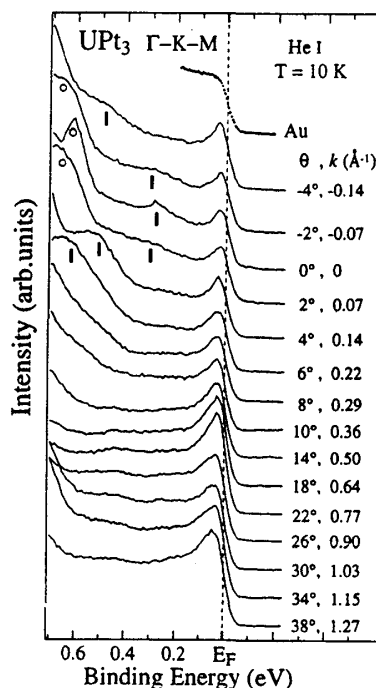


図3-5 フェルミレベル近傍における高分解能角度分解光電子スペクトル。

規格化を行った。Normal emission (Γ (A)点) に対する角度(θ)及び波数(k)をそれぞれのスペクトルに添えてある。まずフェルミレベル直下において、強度に角度依存性をもつ鋭いシャープなピークが存在することが分かる。このピークは $\theta = 0^\circ$ (Γ (A)点)において強度が最小になり、 $\theta = 22^\circ$ (K(H)点)において最も鋭くなる。ピーク強度は角度(θ)を更に大きくすると次第に減少し、 $\theta = 30^\circ$ (M(L)点)においてその強度が最小になる。このことは、フェルミレベルにおけるピーク (E_F ピーク) がUPt₃のbulk (固体中) の電子状態を反映した周期性をもつ本質的な構造であることを示唆する。このピークの特徴を以下に挙げる。(1)今回のエネルギー分解能の範囲内で E_F ピークにエネルギー分散は観測されていない。(2)フェルミレベルは E_F ピークのリーディングエッジの中点ではなく、ピーク位置に近いエネルギー位置に存在する。このことは、金のフェルミエッジとの比較からも明らかである。また、バンド計算においてPt5d状態とU5f状態は完全に分離していることや、図3-5において|と○印で示された大きく分散するピークが図3-3におけるPt5dバンドとよく対応しているから、このシャープな E_F ピークはU5f電子に起因する状態である事が分かる。

図3-6に本測定により得られたフェルミレベル近傍のバンド構造と3つの異なるバンド計算の結果[9,11,12]とを比較したものを示す。図3-6(a)が、図3-3に示した方法を用いて得られた、実験のバンド構造である。ここで、実験と計算の比較を容易にするために、実験のバンド (図中の濃い部分) がhigh-symmetry points (Γ , K, M, A, H, L点) と交わる点にa-n、計算のバンドにはA-Hの名前をそれぞれ付けておく。図3-4においても述べたとおり、Pt5dバンド(A-D')の全体的な分散形状は実験と計算でよい一致を

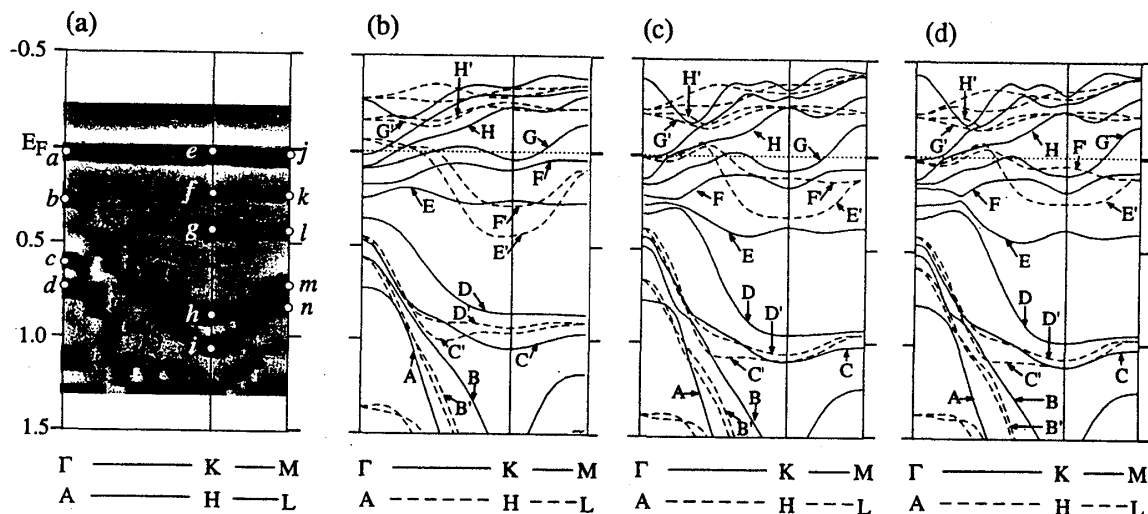


図3-6 (a)フェルミレベル近傍における高分解能角度分解光電子スペクトルから得られたUPt₃のバンド構造。(b)FLAPW法[9]、(c)、(d)LMTO法[11,12]によるバンド計算の結果。

示している。例えば、図3-6(a)でb点からh点を通してm点へと分散を示すバンド(b-h-mバンド)は図3-6(b)-(d)のそれぞれの計算におけるDバンドに対応する。また、図3-6(a)においてb-h-mバンドとほとんど平行に分散を示すバンド(b-i-nバンド)はD,C,C'バンドの組み合わせによるバンドであると考えられる。更に、c及びd点から高結合エネルギー側に分散を示すバンドは、計算におけるA及びB(B')バンドとの対応が良い。以上、Pt5dバンドにおける定性的な一致点を述べてきたが、定量的な相違点も幾つか存在する。例えば、図3-6(a)においてb-h-mバンド及びb-i-nバンドはK(H)点とM(L)点の間でかなり分散を示している。それに対して、図3-6(b)-(d)において対応するD'及びD,C,C'バンドはK(H)点とM(L)点の間ではほとんど分散を示していない。このことは、M(L)点近傍におけるPt5d軌道とU5f準位の混成強度が、どのバンド計算においてもオーバーエスティメイトされている事を示唆する。実験と計算の相違点に加えて、3つのバンド計算(図3-6(b)-(d))の間においてもPt5dバンドに関して定量的な相違点が存在する。具体的に挙げると、FLAPW法によるバンド計算(図5(b))におけるDバンドは、Γ点から高結合エネルギー側に次第に分散を示していくのに対し、他の2つのLMTO法によるバンド計算(図4-3-7(c),(d))におけるDバンドは、Γ点近傍でまず低結合エネルギー側に向かい、それから高結合エネルギー側に分散している。図3-6(a)からも明らかなように、計算のDバンドにおいてΓ点近傍で見られるような低結合エネルギー側への分散は、実験のb-h-mバンドにおいては観測されない。このことは、図3-6(c),(d)のバンド計算がΓ点近傍においてPt5d軌道とU5f準位の間の混成強度をアンダーエスティメイトしているためであると考えられる。ブリルアン・ゾーンの1部において、以上に挙げて来たような定量的な相違点が見られるものの、UPt₃におけるPt5dバンドによって占められる価電子帯全体の基本的なバンド構造は、バンド計算によって良く再現されていると言える。

それに対して、図3-6(a)のフェルミレベル近傍において観測されている3つの「バ

ンド」(a-e-j, b-f-k, g-lバンド)は計算におけるPt5dとは全く異なっていることからU5fに起因する構造であると考えられる。実験(図3-6(a))において、フェルミレベル近傍に観測されたa-e-jバンドは角度分解光電子スペクトル上でシャープな E_F ピークとして現れ、このピークは、ブリルアン・ゾーンと同様の周期性で、系統的な強度変化を示す。それに対して、より高結合エネルギー側のb-f-k及びg-lバンドは、高分解能角度分解光電子スペクトル(図3-5)において、鋭い E_F ピークと大きく分散するPt5dバンドの間で、影をつけて示したような強度の弱いブロードな構造として現れる。これらの構造(a-e-j, b-f-k, g-lバンド)について実験と計算を比較すると、まず第1に、バンド計算においてフェルミレベル直上にはフラットなバンドは存在しないことが分かる。一方、バンド計算においてフェルミレベル近傍で分散を示すU5fバンドの一部分は、実験におけるフラットなバンドと対応がつくようにも見える。しかしながら、本測定のエネルギー及び角度分解能はそれぞれ50 meVと $0.070 \pm 1 \text{ \AA}^{-1}$ であり、もし仮に計算におけるU5fバンドのような大きな分散が存在するのであれば十分に観測できると考えられる。実験における2本のフラットなb-f-k及びg-lバンドは、それぞれ計算におけるF及びEバンドに対応するように見えるが、計算のバンドはどれも実験に比べてフェルミレベルに近づいてしまっている。(この傾向はFLAPW法によるバンド計算[9](図3-6(b))において特に顕著に見られる。)しかしながら、バンド計算のような2本のフラットなバンドF, Eが存在している場合は、角度分解能による外的ブロードニング効果も受けにくいと考えられるため、光電子スペクトルにおいて、強い強度を持った鋭いシャープな構造として観測されることが期待される。実際は、図3-6において、b-f-k及びg-lバンドによる2つの構造をU5f電子に起因する E_F ピークや高結合エネルギー側のPt5dバンドと比較すると、そのスペクトル強度はどちらに比べてもかなり弱いことが分かる。さらに、計算において分散を示すE'やF'に対応するようなU5fバンドは実験(図3-6(a))では観測されていない。以上のことから、シャープな E_F ピークはU5fバンドであり、高結合エネルギー側に観測されたほとんど分散を示さない弱くブロードな構造は、バンド計算で扱われるような1粒子バンドではなく、U5f電子の強い電子相関によりフェルミレベルから離れたエネルギー位置に表れたサテライト構造のようなものである可能性が高いと考えられる。

ここで、角度分解光電子分光により観測された幅の狭いU5fバンド(ピーク)の形成過程について考えてみる。一般に、Ce及びYb化合物における4f準位は、1不純物アンダーソンモデル[27]による近似でよく説明されることが知られている。しかしながら、本測定において観測されたU5fピークは、結晶周期性とよく合うスペクトル強度の変化を示しているため、局在的なf準位と伝導電子との混成を考える1不純物アンダーソンモデルで説明することは困難である。また、これまで述べてきたように、バンド計算は、Pt5dバンドについては実験結果をよく再現しているものの、フェルミレベル直下における幅の狭いU5fバンドについては再現していない。ここで、dHvAの結果とバンド計算の結果はよく一致していることを考慮すると、少なくとも

フェルミ面形状に関しては、バンド計算がよい近似になると考えられる。このことから、UPt₃におけるU5fバンドは、バンド計算において予測される点でフェルミレベルを切る状態を保ちつつ、そのバンド幅が狭くなることが示唆される。以上のことから、実験的に観測された幅の狭いU5fバンドは、強い電子相関による繰り込み（renormalization）の効果を受けることによってフェルミレベルにおいて形成された幅の狭い準粒子バンド（ピーク）であると考えられる。このとき、フェルミレベルから離れた位置に現れるブロードなサテライト構造（図3-6(a)におけるフラットな構造b-f-k及びg-l）については、繰り込み（renormalization）の過程を通じて現れたインコヒーレントな構造[28]として理解することができる。

更に、物性測定の結果と定性的な比較を行う。本測定におけるエネルギー分解能を考慮すると、観測されたバンド幅はおよそ50 meV程度であると考えられる。バンド計算の結果得られたU5fのバンド幅は500 meV程度であるから、単純な比較により、繰り込み因子（renormalization-factor）は最大でもおよそ1/10程度であると推測される。すなわち、実験から見積もられるUPt₃の質量増強因子（mass enhancement factor）は最低でも10程度である。電子比熱実験から見積もられる値は～20[4]、dHvAにおけるサイクロトロン有効質量から見積もられる値は10-50[9,10]程度である。このことから、本測定結果により見積もられた質量増強因子は他の物性測定と矛盾しないと言える。今回得られた大きな質量増強因子の値は、UPt₃におけるU5f電子状態を本質的に理解する上で、強い電子相関の効果を取り入れることが重要であることを示唆している。従って、バンドの有効質量増強に代表される電子相関の効果を適切に取り入れるることにより、バンド計算の枠組みでUPt₃の電子状態を理解することが可能であることが示唆される。

また、最近では、重い電子系化合物の電子状態を理解するモデルとして、周期的アンダーソンモデル(PAM)が注目されてきている。実際、このモデルを基にして格子の効果（結晶周期性など）を計算に取り入れることで、角度分解光電子分光の結果と定性的に一致するような近藤ピークの運動量及び温度依存性を得たという報告もなされている[20]。今後、UPt₃に代表されるような重い電子系U化合物におけるU 5f準位の本質的性質（局在・遍歴）を理解するためには、更なる実験・理論両面からの研究が必要不可欠であると考えられる。

§3-2 URu₂Si₂の実験結果と考察

図3-7に30 KにおけるURu₂Si₂のΓ-X方向（図3-8参照）の角度分解光電子スペクトルを示す。試料表面に対して垂直方向（θ = 0°, Normal Emission）からの角度を、対応する角度分解光電子スペクトルの横に記してある。角度分解光電子スペクトル上のピークは、それぞれブリルアン・ゾーン中のバンドに対応しており、そのエネル

ギー位置及び強度の角度依存性が、 URu_2Si_2 のバンド構造を反映していると考えられる。($\theta = 0^\circ$ のスペクトルが図3-8のブリルアン・ゾーン中の Γ 点及びZ点に、 $\theta = 22^\circ$ がR点に、 $\theta = 24^\circ$ がX点に対応する)。詳しく見ていくと、まず $\theta = 0^\circ$ 周辺でフェルミレベル直下から1.0 eVのエネルギー範囲において観測される2,3本のピークは、角度が大きくなるにつれて高結合エネルギー側に大きく分散していき、X(X)点近傍の $\theta = 24^\circ$ 周辺において0.8-2.0 eVに分散の底を持つことが分かる。より高結合エネルギー側にも数本のブロードなピークが存在し、それぞれが URu_2Si_2 のバンド構造を反映した複雑なピーク分散を示している。

これらのピーク分散(すなわちバンド分散)をより直接的に見るために§3-1において用いた方法と同様の方法によりバンドマッピングを行った(図3-3参照)。図3-9(a)に、角度分解スペクトルから得られた URu_2Si_2 の Γ -X(Z-R-X)方向におけるバンドマッピングの結果を示す。濃い部分が実験的に得られたバンドに対応する。まず第1に分散を示す数本のバンドはそれぞれ Γ (Z)点及び(又は)X(X)点について対称的になっていることが分かる。例えば、 Γ (Z)点においてフェルミレベル直下

から1.0 eVのエネルギー範囲で大きな分散を示す3本のバンドについてはその対称性が容易に確認される。さらに、 Γ (Z)点において高結合エネルギー側2.0-4.0 eVのエネルギー範囲に少なくとも4本のバンドが存在する。これらのバンドは Γ (Z)点からX(X)点にかけて連続的な分散を示している。注目すべき点は、これらのバンドが全てX(X)点において対称的に折り返していることである。このようなバンド形状は表面から脱出する光電子の平均自由行程が非常に短いために、光電子の波数の垂直方向成分(k_\perp)が不確定性を有することを示唆する。すなわち、本測定において角度分解光電子スペクトル上で明確なピークとして現れているのは、ブリルアン・ゾーン中で状態密度が比較的大きいhigh-symmetry line上のバンドであると考えられる[26]。

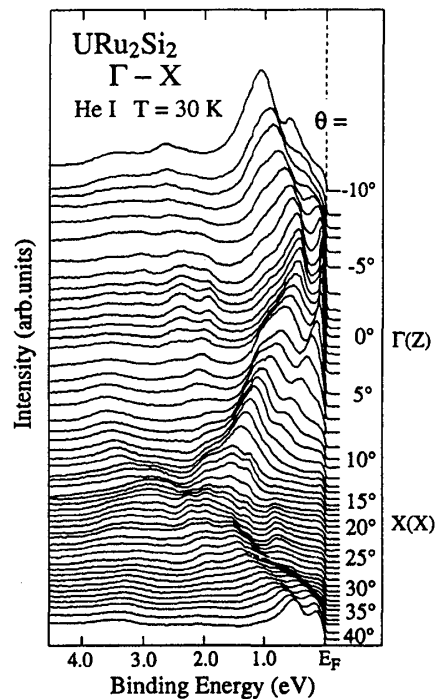


図3-7 URu_2Si_2 の高分解能角度分解光電子スペクトル。

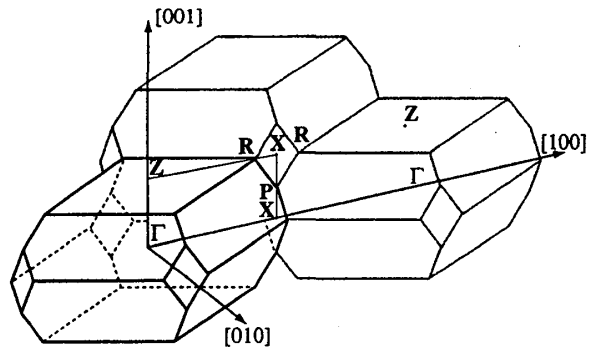


図3-8 URu_2Si_2 (body centered Tetragonal) のブリルアン・ゾーン。測定は Γ -X方向(Γ X-XRZ emission plane)について行った。

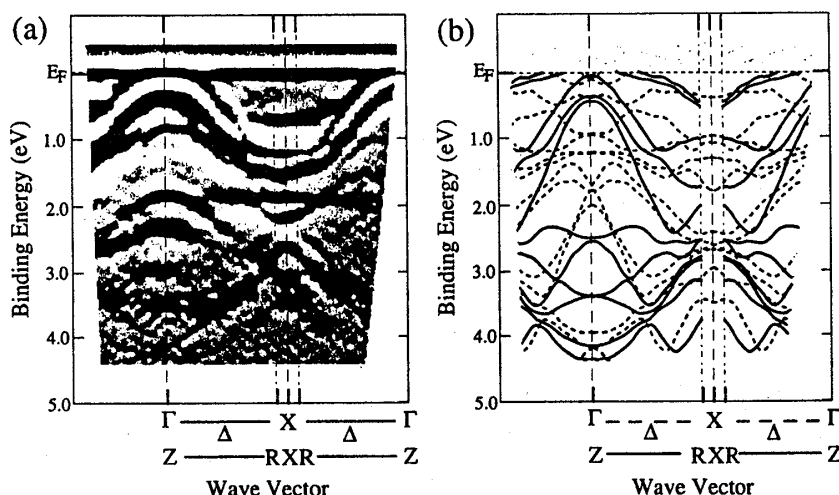


図3-9 (a)角度分解光電子スペクトルから得られたURu₂Si₂のバンド構造。(b)RLMT法によるバンド計算の結果[29]。

言い換えれば、URu₂Si₂のブリルアン・ゾーン中でΓX-XRZ面における情報、特にΓ-X(Z-R-X) high-symmetry lines上のバンドの情報を得ていると考えられる。更に、図3-9(a)から実験的に観測されたバンドは、それぞれbulk（固体中）のBrillouin zoneと同様の対称性を持って分散を示していることが分かる。このことから、角度分解光電子スペクトルから得られたバンド分散がそれぞれbulkの電子状態を反映したものであることが確認される。

図3-9(b)に、G. J. RozingらによるRLMT法によるバンド計算の結果得られたバンド構造[29]をΓ-X(Z-R-X)方向のhigh-symmetry lineについて示す。バンド計算から、価電子帯全体は主にRu4d電子により占められており、フェルミレベル近傍において、U5f電子とRu4d軌道が強く混成した状態になることが示唆されている。図3-9から、価電子帯のバンド構造は、実験と理論で全体的によく一致していることが分かる。例えば、実験において、 $E_F - 1.0$ eVのエネルギー範囲で観測された3本のバンドは、Γ(Z)点からX(X)点に近づくにつれて高結合エネルギー側に大きな分散を示している。このバンドを計算と比較すると、 E_F 側の2本のバンドは、計算においてZ-R-X方向で大きな分散を示すバンドに対応し、Γ(Z)点で0.9 eV付近に実験で観測されたバンドは、計算において、Γ-X方向で余り分散を示さないバンドに対応する。高結合エネルギー側においては、lifetime broadeningの効果により実験の構造が余りはっきりしなくなっているものの、大まかな構造は実験と理論でよく一致していると考えられる。このことから、バンド計算はURu₂Si₂価電子帯における全体的なバンド構造については良い近似になることが示唆される。

図3-10に実験的に得られたフェルミレベル近傍のバンド構造（図3-10(a)）とバンド計算[29]（図3-10(b)）の比較図を示す。実験のバンド構造は図3-9(a)と同様の方法を用いて得た。前にも述べたとおり、Γ(Z)点付近のフェルミレベル近傍におけるRu4dバンドの分散形状は実験と計算でよく似ていることが分かる。それに対して、X(X)点付近に注目すると、バンド計算では、大きな分散を示すU5f-Ru4d混成バンドが予測されているが、実験においては、 $E_F - 200$ meVのエネルギー範囲でブロードな

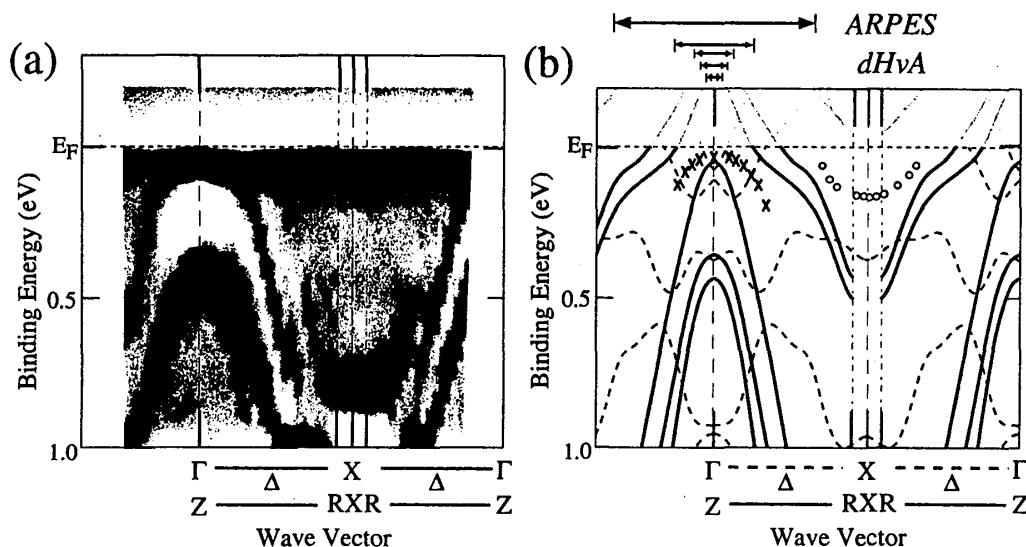


図3-10 (a)フェルミレベル近傍における高分解能角度分解光電子スペクトルから得られた URu_2Si_2 のバンド構造。(b)RLMT0法によるバンド計算の結果。○及び×はフェルミレベル極近傍における詳細測定により得られた角度分解光電子スペクトル(図3-11)のピーク位置。上部に角度分解光電子分光及びdHvA測定により見積もられるフェルミ面の大きさをそれぞれ矢印で示してある。

構造のみが観測されていることが分かる。そこで、物性に深く関わるフェルミレベル近傍のバンド構造をより詳しく調べるために、 E_F -250 meVのエネルギー範囲で更なる詳細測定を行った。

図3-11に、より高分解能($\Delta E \sim 30$ meV)を用いて得られたフェルミレベル極近傍における Γ -X(Z -R-X)方向の高分解能角度分解光電子スペクトルを示す。図3-11(a)及び(b)は、それぞれ Γ (Z)点及びX(X)点近傍の波数領域におけるスペクトルである。図3-11(a)から、フェルミレベル近傍で鋭いピークとして現れるRu4dバンド(図3-10(b)中の×)は、 Γ (Z)点で30 meV付近に頂上を持つことがわかる。また、Ru4dピークのリーディングエッジの midpoint はフェルミレベルより高結合エネルギー側に存在することから、このRu4dバンドはフェルミレベルを切っていないことが確認される。さらに、Ru4dバンドの分散形状がフェルミレベル直下においてバンド計算に比べてフラットになっていることから、バンド計算が Γ 点近傍におけるRu4d軌道とU5f電子の混成強度をアンダーエスティメイトしている可能性が示唆される。このことは、フェルミレベル極近傍のU5f-Ru4d混成バンドについて、バンド計算が余りよい近似とならないことを示している。それに対して、X(X)点近傍に注目すると、シャープなピークは観測されず、フェルミレベル近傍において角度に依存したスペクトル強度の変化のみが観測されていることが分かる。詳しく見ていくと、フェルミレベル近傍のスペクトル強度は $\theta = 9^\circ$ 付近で急激に減少し、角度を大きくしていくと $\theta = 11^\circ$ と $\theta = 13^\circ$ の間で急激に増大している。このようなフェルミレベル直下のピーク強度の変化は、 $\theta = 11^\circ \sim 13^\circ$ 付近でフェルミレベルを切るバンドの存在を示唆する。更に角度を大きくしていくとフェルミレベル近傍のスペクトル強度は次第に増加していき、 $\theta = 16^\circ$ においては100 meV付近にブロードなピークが明確に観測される。図3-11(b)において観測されるピークは図3-11(a)のピークに比べ余りはっきりしないが、大体○印

で示したような分散 (図3-10(b)) を示していることが分かる。このブロードなバンドは $\theta = 22^\circ$ で 150 meV 付近に底を持ち、 $\theta = 30^\circ$ 近傍で非占有状態に入っていくように見える。 $\theta = 22^\circ$ は X(X) 点に対応することから、このバンドは X(X) 点について対称的な分散を示していることが示唆される。図3-10(b)に挿入したピーク分散 (○) とバンド計算の比較により、X(X) 点近傍で観測されたバンドは Z 点においてホールポケットを形成する U5f-Ru4d バンドに対応すると考えられる。実験におけるこのバンドは X(X) 点で 400-500 meV に底を持つことから、実験に比べてかなりバンド幅が広がっていることが分かる。

このことから、URu₂Si₂ における U5f-Ru4d バンドは U5f 電子の強い電子相関より、バンド計算では取り入れられない繰り込み (renormalization) の効果を受け、かなりバンド幅が狭くなっていると考えられる。また、実験と計算における非占有状態におけるバンド幅から、大まかに見積もられるこのバンドの質量増強因子はおおよそ3程度であり、電子比熱から得られている値 (~ 18) に比べてかなり小さい。このことから、今回は観測されなかったフェルミ面によって有効質量の増強を定量的に説明することができると考えられる。

URu₂Si₂ のフェルミ面についてより詳しく議論する。図3-10(b)において○でトレースしたホールポケットがフェルミレベルを切る位置 (フェルミ波数 k_F) は、Z 点に対して $k_F \sim 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ 程度と見積もられる。計算から予測される2本の U5f-Ru4d 混成バンドのフェルミ波数は、Z 点に対してそれぞれ $k_F \sim 0.2 \text{ \AA}^{-1}$ と $k_F \sim 0.3 \text{ \AA}^{-1}$ であり、実験のホール面の大きさに比べて小さい。一方、dHvA 測定 [23-25] では、ほとんど角度依存性を示さない4本の独立した dHvA 振動が観測されており、これから見積もられるフェルミ波数の値は、それぞれ $k_F \sim 0.05, 0.08, 0.09, 0.2 \text{ \AA}^{-1}$ である。dHvA 測定から見積もられたフェルミ面の大きさを、図3-10(b)の上部に今回の角度分解光電子分光測定から見積もられた大きさと比較して矢印で示してある。特に、dHvA 測定により得られた最も大きいフェルミ面 ($k_F \sim 0.2 \text{ \AA}^{-1}$) は、 Γ 点の大きなエレクトロン面か Z 点の小さなフェルミ面に対応していると考えられている [25]。しかしながら、図3-10(b)からも明らかなように、最も大きい dHvA 測定のフェルミ面でさえも、角度分解光電子分光によって得られたフェルミ面よりもかなり小さい。このことから、本測定により観測されたフェルミレベル近傍のブロードなバンド分散は、Z 点において大きい方のホール面を形成している U5f-Ru4d 混成バンドに対応すると考えられる。また、

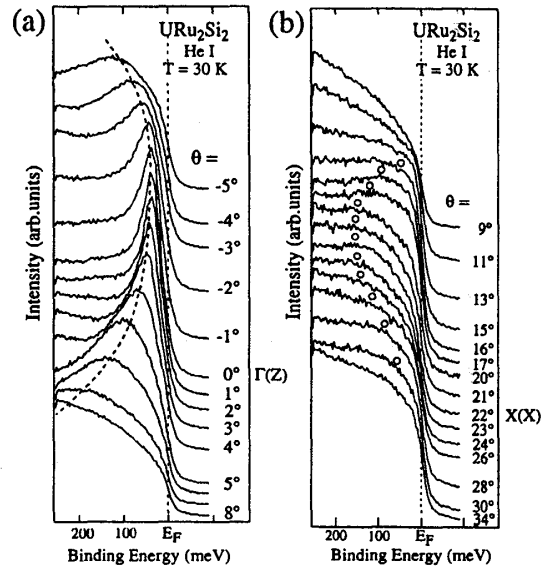


図3-11 (a) Γ (Z)点近傍及び(b) X(X)点近傍のフェルミレベル極近傍における高分解能角度分解光電子スペクトル。

dHvA測定フェルミ面では説明されないことから、まだ観測されていなかった新たなフェルミ面を角度分解光電子分光により観測したと考えている。しかしながら、本測定では、 $\Gamma(Z)$ 点においてバンド計算で予測されているような、小さなフェルミ面については観測できなかったことから、バンド計算やdHvA測定の結果とより定量的な比較を行うためには、更なる高エネルギー分解能・高角度分解能を用いた詳細測定が必要不可欠である。

第四章 まとめ

重い電子系のU化合物における、U5f電子状態を調べるためにUPt₃及びURu₂Si₂について高分解能角度分解光電子分光を行った。それぞれの結果から明らかになったことを以下に示す。

- 1) UPt₃及びURu₂Si₂において価電子帯全体を占めるdバンド (Pt5d及びRu4dバンド) は、バンド計算によりよく再現される。
- 2) UPt₃及びURu₂Si₂においてU5f電子の影響が強くなるフェルミレベル近傍のバンド構造は、バンド計算では余りよく再現されない。これは、U5f電子の関わるバンド (U5f及びU5f-Ru4d混成バンド) がU5f電子の強い電子相関の効果により繰り込み (renormalization) の効果を受けて、バンド計算に比べてかなりバンド幅が狭くなることを示している。角度分解光電子分光から見積もられる質量増強因子は、UPt₃のU5fバンドについては10以上であり、電子比熱やdHvAの測定結果とよく一致している。URu₂Si₂のU5f-Ru4dバンドについては3程度と見積もられ、電子比熱等から見積もられる値に比べて小さいため、観測されなかったフェルミ面においてかなりの有効質量の増強が存在することが期待される。
- 3) URu₂Si₂において、Z点で大きなホール面を形成するU5f-Ru4d混成バンドを観測した。また、dHvA測定によるフェルミ面との比較から、この大きなホール面はdHvA測定でまだ観測されていなかった異なるフェルミ面であると推測される。

以上の実験結果は、高分解能角度分解光電子分光法が、重い電子系U化合物におけるバンド構造、及びフェルミ面の形状を調べる上で非常に有効な実験手段であることを示している。また、強い電子相関の効果によって非常に幅の狭くなった準粒子バンドを実験的に直接観測できる可能性が示された。更に、温度依存性を測定できる光電子分光測定の利点を生かして、相転移温度の前後においてフェルミレベル近傍のバンド構造の変化をも測定することも、非常に重要であると考えられる。今後、更なる高エネルギー・角度分解能の角度分解光電子分光測定によりU化合物の電子構造を研究していくことは、5f強相関電子系の複雑な物性を解明していく上で、非常に重要な役割を果たすことが期待される。

参考文献

- [1] 日本物理学会誌 **42**, 721 (1987) 特集「重い電子系」.
- [2] 大貫惇睦、小松原武美; 日本物理学会誌 **41** (1986) 423.
- [3] 大貫惇睦、上田和夫著、物理学選書 **23**, 「重い電子系の物理」裳華房.
- [4] G.R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **56** (1984) 755.
- [5] R.H. Heffner and M.R. Norman, Comm. Cond. Mat. Phys. **17** (1996) 361.
- [6] 高橋隆、固体物理 **29** (1994) 183.
- [7] 高橋隆、固体物理 **29** (1994) 743.
- [8] 芦原新、物性研究 **70-5** (1998) 623; 組頭広志、物性研究 **68-6** (1997) 794; 芦原新、修士論文 (東北大学 1997年); 組頭広志、修士論文 (東北大学 1996年).
- [9] 木村憲彰、博士論文 (大阪大学 1997年); N. Kimura, R. Settai, Y. Onuki, H. Toshima, E. Yamamoto, K. Maezawa, H. Aoki, and H. Harima, J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 3881; N. Kimura, R. Settai, Y. Onuki, H. Yamamoto, K. Maezawa, H. Aoki, and H. Harima, Physica B **223-224** (1996) 181.
- [10] L. Taillefer, R. Newbury, G. G. Lonzarich, Z. Fisk, and J. L. Smith, J. Magn. Magn. Mater. **63 & 64**, 372 (1987); L. Taillefer and G. G. Lonzarich, Phys. Rev. Lett. **60**, 1570 (1988).
- [11] R. C. Albers, A. M. Borng and N. E. Christensen, Phys. Rev. B **33**, 8116 (1986).
- [12] T. Oguchi and A. J. Freeman, J. Magn. Magn. Mater. **52**, 174 (1985).
- [13] H.R. Ott and Z. Fisk, *Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides*, eds. A.J. Freeman and G.H. Lander (North Holland, amsterdam, 1984), chap. 4, p.271.
- [14] A. J. Arko, C. G. Olson, D. M. Wieliczka, Z. Fisk, and J. L. Smith, Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 2050.
- [15] J. W. Allen, S.-J. Oh, L. E. Cox, W. P. Ellis, M. S. Wire, Z. Fisk, J. L. Smith, B. B. Pate, I. Lindau, and A. J. Arko, Phys. Rev. Lett. **54** (1985) 2635.
- [16] A. W. Mitchell, D. J. Lam and Z. Zolnierrek, C. G. Olson Z. Fisk, J. L. Smith, and M. del Giudice, J. Less-Common Metals, **133** (1987) 87.
- [17] J. M. Imer, D. Malterre, M. Grioni, P. Weibel, B. Dardel, and Y. Baer, Phys. Rev. B **44** (1991) 10455.
- [18] A. J. Arko, J. J. Joyce, A. B. Andrews, J. D. Thompson, J. L. Smith, E. Moshopoulou, Z. Fisk, A. A. Menovsky, P. C. Canfield, and C. G. Olson, Physica B **230-232** (1997) 16.
- [19] A. J. Arko, J. J. Joyce, A. B. Andrews, J. D. Thompson, J. L. Smith, D. Mandrus, M. F. Hundley, and A. L. Cornelius, Phys. Rev. B **56** (1997) R7041.
- [20] A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, and J. K. Freericks, Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 5168.
- [21] M.B. Maple, J.W. Chen, Y. Dalichaouch, T. Kohara, C. Rossel, M.S. Torikachvili, M.W. McElfresh and J.D. Thompson, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 185; Victor Barzykin and Lev P. Gor'kov, Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 4301.
- [22] A LeR Dawson, W.R. Datars, J.D. Garrett and F.S. Razavi, J. Phys.: Condens. Matter **1** (1989) 6817.
- [23] C. Bergemann, S.R. Julian, G.J. McMullan, B.K. Howard, G.G. Lonzarich, P. Lejay, J.P. Brison and J. Flouquet, Physica B **230-232** (1997) 348.
- [24] H. Ohkuni, T. Ishida, Y. Inada, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Onuki and S. Takahashi, J.

- Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 945.
- [25] N. Keller, S.A.J. Wiegers, J.A.A.J. Perenboom, A. de Visser, A.A. Menovsky and J.J.M. Frase, J. Magn. Magn. Mater. **177-181** (1998) 298.
- [26] T. Grandke, L. Ley, and M. Cardona, Phys. Rev. B **18** (1978) 3847.
- [27] 例えば, D. Malterre, M. Grioni and Y. Baer, Adv. Phys. **45** (1996) 299; J.W. Allen, S.J. Oh, O. Gunnarsson, K. Schönhammer, M.B. Maple, M.S. Torikachvili and I. Lindau, Adv. Phys. **35** (1986) 275.
- [28] 伊達宗行監修, 「大学院物性物理2 強相関電子系」講談社.
- [29] G.J. Roizing, P.E. Mijnarends and D.D. Koelling, Phys. Rev. B **43** (1991) 9515.

謝辞

高橋隆助教授には、研究を行うにあたっての心構えから論文の書き方に至るまで懇切丁寧にご教授いただき、その熱心なご指導の下で修士論文を書き上げるまでに至った事を深く感謝いたします。

組頭広志氏、金亨度博士には実験方法やデータの解釈などで多大なご指導をいただき、また光電子分光法のみならず固体物理学の基礎からご教示いただき深く感謝いたします。

本研究の対称とした試料をご提供いただいたばかりではなく、それらの物性についてもご指導いただいた木村憲彰助手、芳賀芳範博士に深く感謝いたします。

UPt₃のバンド計算をしていただいたばかりではなく、固体物理学の基礎からご教授くださった播磨尚朝助教授、バンド計算の初歩からご指導いただいた山上浩志助手に深く感謝いたします。

酒井治助教授、佐藤憲彰助教授には、実験結果について有益なアドバイスをいただき深く感謝いたします。

佐藤繁教授、鈴木章二助教授、田中章順助手、横谷尚陸博士、梁時熏博士、アシシ・チャイナニ博士、藤森伸一博士、佐藤健氏、藤澤英樹氏、芦原新氏、佐藤宇史氏、中井俊之君、内藤寧則君、ディヌ・イオネル君、神山知之君、相馬清吾君を始めとする放射光・光電子研究室の皆様には常日頃ご協力いただいて感謝しております。

磁気研究室、並びに低温研究室の皆様には、試料の取り扱いからその物性測定までいろいろご指導、ご協力いただいて非常に感謝しております。

最後にこのような機会を与えていただき、精神的にも経済的にも支えていただいた両親に深く感謝いたします。